

X 1,2

2  $\mu\text{m}$   $\text{CaCO}_3$  filler102 1,12, 13<sup>14</sup>, 15, 16, 17, 18

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 08-059981

(43)Date of publication of application : 05.03.1996

(51)Int.Cl.

C08L 75/04  
C08L 75/04  
B29C 55/28  
C08J 5/18  
// C08L 23/16  
B29K 75:00

(21)Application number : 06-215210

(71)Applicant : TONEN CHEM CORP

(22)Date of filing : 18.08.1994

(72)Inventor : ISHIZUKA HIDENORI

TODA HIDEAKI

MIYASAKA KENJI

## (54) MOISTURE-PERMEABLE URETHANE-BASED ELASTOMER FILM

(57)Abstract:

PURPOSE: To prepare a urethane-based elastomer film, having good moisture permeability and waterproofness, improved in moldability through increasing its melt-tension and its blocking resistance, etc., in particular, surpassing the level of a moisture permeability of  $\geq 2000\text{g/m}^2.24\text{hrs.}$  and that of a water resistance of  $\geq 1000\text{mmH}_2\text{O}$  considered as the respective targets in the diaper field, by using a polyether-based thermoplastic polyurethane excellent in mechanical strength and stretchability.

CONSTITUTION: This elastomer film is prepared by film-formation of a thermoplastic elastomer composition obtained by blending 5-40 pts.wt. of a filler with 100 pts.wt. of a polyurethane-based resin composition comprising 75-95wt.% of a thermoplastic polyurethane resin with the soft segments consisting of a polyether and 5-25wt.% of an ethylene-propylene-diene copolymer rubber.

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平8-59981

(43)公開日 平成8年(1996)3月5日

| (51)Int.Cl. <sup>5</sup> | 識別記号  | 庁内整理番号  | F I | 技術表示箇所 |
|--------------------------|-------|---------|-----|--------|
| C 0 8 L 75/04            | NGG   |         |     |        |
|                          | NFY   |         |     |        |
| B 2 9 C 55/28            |       | 7639-4F |     |        |
| C 0 8 J 5/18             | C F F |         |     |        |
| // C 0 8 L 23/16         | LCQ   |         |     |        |

審査請求 未請求 請求項の数 3 F D (全 5 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願平6-215210

(22)出願日 平成6年(1994)8月18日

(71)出願人 000221627

東燃化学株式会社

東京都中央区築地4丁目1番1号

(72)発明者 石塚 英紀

神奈川県川崎市川崎区千鳥町3番1号 東

燃化学株式会社技術開発センター内

(72)発明者 戸田 英明

神奈川県川崎市川崎区千鳥町3番1号 東

燃化学株式会社技術開発センター内

(72)発明者 宮坂 健司

神奈川県川崎市川崎区千鳥町3番1号 東

燃化学株式会社技術開発センター内

(74)代理人 弁理士 佐藤 良博

(54)【発明の名称】 透湿性ウレタン系エラストマーフィルム

(57)【要約】

【構成】ソフトセグメントがポリエーテルからなる熱可塑性ポリウレタン樹脂75～95重量%、エチレン-プロピレン-ジエン共重合体ゴム5～25重量%からなるポリウレタン系樹脂組成物100重量部に対して充填剤5～40重量部を添加してなる熱可塑性エラストマー組成物をフィルム成形してなる透湿性ウレタン系エラストマーフィルム。

【効果】溶融張力の向上、ブロッキングの改善等による成形性が改良され、透湿性、防水性に富み、特に、おむつ分野において指標とされる透湿度 $2000\text{ g/m}^2 \cdot 24\text{ hrs}$ 以上、耐水度 $1000\text{ mmH}_2\text{O}$ 以上の水準をクリアし、機械的強度に優れ、伸縮性に優れたポリエーテル系の熱可塑性ポリウレタンを用いたウレタン系エラストマーフィルムが得られる。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】(a) ソフトセグメントがポリエーテルからなる熱可塑性ポリウレタン樹脂75～95重量%

(b) エチレン-プロピレン-ジエン共重合体ゴム5～25重量%からなるポリウレタン系樹脂組成物100重量部に対して(c) 充填剤5～40重量部を添加してなる熱可塑性エラストマー組成物をフィルム成形してなることを特徴とする透湿性ウレタン系エラストマーフィルム。

【請求項2】ポリウレタン系樹脂組成物が、低密度ポリエチレン系樹脂を含有してなることを特徴とする、請求項1に記載の透湿性ウレタン系エラストマーフィルム。

【請求項3】フィルム成形が、インフレーション法により行われることを特徴とする、請求項1または2に記載の透湿性ウレタン系エラストマーフィルム。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、ウレタン系エラストマーフィルムに関し、特に、オムツのギャザー、バックシート等の衛生材料分野、コート等の衣料分野等において、就中、透湿性、防水性の具備を必要とする分野において有効に使用できるウレタン系エラストマーフィルムに関する。

## 【0002】

【従来の技術】従来の透湿性ウレタンフィルムの製造方法としては、ポリエーテル系熱可塑性ポリウレタンを用い、特開昭62-290714号公報に記載されているような連続コーティング装置を用いて、ポリウレタン重合体の溶媒溶液を離型紙に塗布し、次いで、乾燥炉中を通過させて溶媒を乾燥させた後、形成されたフィルムを離型紙から剥離せずにあるいは剥離して巻取ロールに巻き取る方法がある。しかし、当該ポリウレタン重合体の溶媒溶液を離型紙に塗布し、溶媒を乾燥させてウレタンフィルムを得る方法は、溶媒の回収、乾燥工程等が必要で、コスト高につながり、生産性にも問題がある。

【0003】また、熱可塑性ポリウレタンエラストマーは、粘着性が高く、ブロッキングし易く、溶融張力が低いため、そのもの単独では、キャスト法やインフレーション法等による製膜は、困難であるために、熱可塑性ポリウレタンに溶融張力が高く温度依存性の低い樹脂やブロッキング性を改善する樹脂を混合することにより加工性を改善することが提案されている。しかし、このような樹脂の添加量の増加により得られたフィルムは、成形性が改良されるが、当該ウレタン樹脂の持つ本来の透湿性を損ない、かつ、耐ブロッキング性には未だ改良の余地を残している。

## 【0004】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、かかる従来技術の有する欠点を解消し、溶融張力の向上、ブロッキングの改善等による成形性を改良したポリエーテル系の

熱可塑性ポリウレタンを用いた透湿性、防水性に富むウレタン系エラストマーフィルムであって、機械的強度にも優れたウレタン系エラストマーフィルムを提供することを目的とし、特に、おむつ分野において指標とされる透湿度 $2000\text{ g/m}^2 \cdot 24\text{ hrs}$ 以上、耐水度 $1000\text{ mmH}_2\text{O}$ 以上の水準をクリアし、伸縮性に優れたウレタン系エラストマーフィルムを提供することを目的とする。

## 【0005】

【課題を解決するための手段】本発明は、上記目的に鑑み検討の結果、ポリエーテル系の熱可塑性ポリウレタン樹脂に、溶融張力が高く温度依存性の低い樹脂と充填剤とを特定量配合することにより本発明を完成したものである。すなわち、(a) ソフトセグメントがポリエーテルからなる熱可塑性ポリウレタン樹脂75～95重量% (b) エチレン-プロピレン-ジエン共重合体ゴム5～25重量%からなるポリウレタン系樹脂組成物100重量部に対して(c) 充填剤5～40重量部を添加してなる熱可塑性エラストマー組成物をフィルム成形してなることを特徴とする透湿性ウレタン系エラストマーフィルムに係るものである。

【0006】以下、本発明を詳細に説明する。本発明における前記(a) 熱可塑性ポリウレタン樹脂としては、ソフトセグメントがポリエーテルからなるポリエーテル系ポリウレタンエラストマーを使用する。熱可塑性ポリウレタン樹脂は、長鎖グリコール、短鎖グリコール、ジイソシアネートの付加重合物であるが、当該ソフトセグメントがポリエーテルからなる熱可塑性ポリウレタン樹脂は、長鎖グリコールとして、ポリテトラメチレングリコール(PTMG)、ポリエチレングリコール(PEG)、ポリプロピレングリコール(PPG)などのポリエーテル系化合物、短鎖グリコールとして、エチレングリコール、1,4-ブタンジオール、1,4-ヘキサジオール、ジイソシアネートとしては、トリレンジイソシアネート、4,4'-ジフェニルメタンジイソシアネート、ヘキサメチレンジイソシアネートなどを用い、付加重合して得られる。

【0007】本発明において使用される(b) エチレン-プロピレン-ジエン共重合体は、エチレン、プロピレン及びジエン化合物を含む共重合体のことである。前記ジエン化合物としては、エチリデンノルボルネン、1,4-ヘキサジエン、ジシクロペンタジエンなどがある。上記エチレン-プロピレン-ジエン共重合体ゴム(EPDM)は、プロピレンの含有率が10～80重量%のものが好ましい。より好ましくは、15～70重量%である。当該エチレン-プロピレン-ジエン共重合体の数平均分子量は40万～60万が好ましく、密度は $0.87\text{ g/cm}^3$ 以下が好ましい。さらに、メルトインデックス(190℃, 2.16kg荷重)としては、 $0.1 \sim 12.0\text{ g/10分}$ の範囲内が好ましく、より好まし

くは0.1~5.0g/10分である。

【0008】本発明において使用されるポリウレタン系樹脂組成物における各成分の配合割合は、(a)ソフトセグメントがポリエーテルからなる熱可塑性ポリウレタン樹脂が75~95重量%、(b)エチレン-プロピレン-ジエン共重合体ゴムが5~25重量%である。上記(a)ソフトセグメントがポリエーテルからなる熱可塑性ポリウレタン樹脂が75重量%未満では、ポリウレタンエラストマーの特性が失われ、透湿度が悪くなり、またポリウレタンの特性である耐摩耗性や機械的強度が低下する。一方、95重量%を超えると、インフレーションチューブがブロッキングし易く、両耳スリット後2枚に剥すことが難しくなる。また、ウレタン樹脂は溶融物性への温度依存性が高いため、バブルが不安定で、インフレーション法による製膜が困難となる。(b)エチレン-プロピレン-ジエン共重合体ゴムが5重量%未満では、インフレーションチューブがブロッキングし易く、両耳スリット後2枚に剥すことが難しくなり、フィルムの製膜における安定性が不十分となる。一方、25重量%を超えると、伸縮柔軟性は維持されるが、製品の透湿度が著しく低下する。

【0009】上記ポリウレタン系樹脂組成物においては、低密度ポリエチレン系樹脂を配合することにより、より一層溶融張力の向上、ブロッキングの改善等による成形性を改良できる。当該低密度ポリエチレン系樹脂としては、高圧法によるエチレンの単独重合体、線状低密度ポリエチレンまたはエチレンを主成分とし20重量%以下のビニル系化合物等との共重合体例えばエチレン-酢酸ビニル共重合体、エチレン-アクリル酸エチル共重合体等があげられる。当該低密度ポリエチレン系樹脂の密度は、0.935g/cm<sup>3</sup>以下のものが好ましく、またメルトインデックス(MI、190℃、荷重2、16kg)が0.05~20g/10分のものが好ましい。低密度ポリエチレン系樹脂を配合する場合、(b)エチレン-プロピレン-ジエン共重合体ゴムの40重量%までとすることが好ましい。低密度ポリエチレン系樹脂の配合比率が、40重量%以上では、製品の透湿度が損なわれ、また、伸縮柔軟性が不足する。

【0010】本発明における熱可塑性エラストマー組成物には、(c)充填剤が添加される。(c)充填剤としては、タルク、炭酸カルシウム、セッコウ、カーボンブラック、クレイ、カオリン、シリカ、ケイソウ土、炭酸マグネシウム、炭酸バリウム、硫酸マグネシウム、硫酸バリウム、硫酸カルシウム、リン酸カルシウム、水酸化アルミニウム、酸化亜鉛、水酸化マグネシウム、酸化カルシウム、酸化マグネシウム、酸化チタン、アルミナ、マイカ、シラスパルーン、ゼオライト、珪酸白土、セメント、シリカフェーム、雲母粉、ナイロンパウダー等のブロッキング防止効果のあるものを使用することができるが、タルク、酸化チタン、炭酸カルシウム、シリカ等

が特に好ましい。これらの充填剤は、単独であるいは組み合わせで使用することができる。また、充填剤は、表面処理を施したものをを用いてもよい。上記充填剤の添加量は、上記ポリウレタン系樹脂組成物100重量部に対して5~40重量部である。充填剤の添加量が5重量部未満では、フィルムのMD/TD方向の物性バランスは良好であるが、耐ブロッキング性が改善されない。また、40重量部を超えると、耐ブロッキング性は改善されるが、強度が高くなり、柔軟性が損なわれる。

【0011】上記熱可塑性エラストマー組成物には、必要に応じて、酸化防止剤、紫外線吸収剤、着色剤等を適宜配合することができる。

【0012】本発明では、上記熱可塑性エラストマー組成物を、二軸押出機等を用いて溶融混練し、フィルムに成形する。当該組成物からフィルムを製造する方法は、通常ポリオレフィンフィルムを成形する公知の方法であるT-ダイ押出機によるフラットなフィルムとして成形することができるが、インフレーション法によるチューブ状のフィルムとして成形する空冷インフレーション法が好ましい。空冷インフレーション法において、薄膜化と成形の高速化に必要なバブルを安定させ、熱可塑性ポリウレタン樹脂の特性を損うことなくブロッキング性を低減できる。当該空冷法によるインフレーション成形法では、薄膜化と成形の高速化に必要なバブルを安定させ、熱可塑性ポリウレタン樹脂の特性を損うことなくブロッキング性を低減するためには、樹脂温度180~220℃で、ブロー比を2.0~5.0の範囲で行うのが好ましい。このようなフィルムの製造方法等については特開平3-128945号公報に開示の事項が適用できる。フィルムの厚さは、各種用途により適宜選択されるが、薄膜化と成形の高速化に必要なバブルを安定させ、熱可塑性ポリウレタン樹脂の透湿度をはじめとする特性を損うことなくブロッキング性を低減するためには、通常、25~40μm程度の範囲で成形することが好ましい。

【0013】

【実施例】次に、本発明の実施例を示す。なお、実施例及び比較例における試験方法は次の通りである。

- (1) 透湿度：JIS Z 0208に準拠。
- (2) 耐水度：JIS L 1092に準拠。
- (3) 破断時強度：JIS L 1096に準拠。
- (4) 破断時伸度：JIS L 1096に準拠。
- (5) 50%2サイクル歪：JIS L 1096に準拠。
- (6) 製膜性：◎・・・バブルが全く安定してブロッキング全くなし、○・・・バブルが安定してブロッキングなし、△・・・バブルが不安定でブロッキングあり、X・・・製膜不可。

【0014】実施例1~3. ソフトセグメントがポリエーテルからなる熱可塑性ポリウレタン樹脂(大日精化工

業(株)製商品名レザミンP-210)とエチレン-プロピレングエン共重合体(数平均分子量45万、密度0.87g/cm<sup>3</sup>、MI=0.1g/10分、プロピレン含有量27wt%)および、高圧法低密度ポリエチレン(密度0.935g/cm<sup>3</sup>、MI=0.8g/10分)とからなる表1に示す配合比の組成物100重量部に対して、ステアリン酸処理炭酸カルシウム(平均粒径2μm)30重量部を添加してなる組成物を、180℃にて二軸混練機により熔融混練し、空冷インフレーション法により下記の条件で30μm厚、40μm厚および30μm厚のフィルムを製膜して、それぞれ実施例1、2、3とした。

ダイ径・・・150mm、

プロ-比・・・3.5、

押出機のシリンダ温度・・・190℃

ダイ出口の樹脂温度・・・195℃、

ダイ出口の樹脂圧力・・・200kg/cm<sup>2</sup>、

押出し量・・・35～45kg/hr、

引取速度・・・10m/分、

【0015】得られたエラストマーフィルムについて、透湿度、耐水度、破断時強度、破断時伸度、および50%2サイクル歪を測定した。その結果を表1に示す。

【0016】比較例1. 実施例1～3で使用するソフトセグメントがポリエーテルからなる熱可塑性ポリウレタン\*

\*樹脂50wt%、エチレン-プロピレングエン共重合体30wt%および高圧法低密度ポリエチレン20wt%とからなる組成物を、実施例1と同様にして、180℃にて二軸混練機により熔融混練し、空冷インフレーション法によりフィルムを製膜した。成膜性、機械的物性は良好であるが、熱可塑性ポリウレタン樹脂の量が少ないため、透湿性が阻害されてしまった。

【0017】比較例2. 実施例1において、ステアリン酸処理炭酸カルシウムを配合しなかったことおよび膜厚を60μmとした以外は同様にしてフィルムを製膜した。製膜時、空冷インフレーション法で膨らませた後にニップロールで押圧し、チューブを折畳んだ後に両耳をトリミングして2枚に分けようとしたが、ブロッキングして剥れなかった。尚、表1における透湿度および耐水度の測定値は、二枚重ねのものについての値である。また、製膜終了後に巻取機(ワインダー)からフィルムを繰り出すのも困難な箇所も見られた。その他の機械物性については測定できなかった。

【0018】比較例3. 実施例1において、エチレン-プロピレングエン共重合体を配合しなかった以外は同様にしてフィルムを製膜しようとしたが、熔融張力が低く、製膜が不可能であった。

【0019】

【表1】

|                                  | 実 施 例      |            |            | 比 較 例        |       |                  |
|----------------------------------|------------|------------|------------|--------------|-------|------------------|
|                                  | 1          | 2          | 3          | 1            | 2     | 3                |
| 組成成分                             |            |            |            |              |       |                  |
| PU (wt%)                         | 85         | 85         | 80         | 50           | 85    | 100              |
| EPDM (wt%)                       | 15         | 15         | 15         | 30           | 15    | —                |
| LDPE (wt%)                       | —          | —          | 5          | 20           | —     | —                |
| CaCO <sub>3</sub> (Phr)          | 30         | 30         | 30         | —            | —     | 30               |
| 製膜性                              | ○          | ○          | ◎          | ○            | △     | X                |
| フィルム厚み(μm)                       | 30         | 40         | 30         | 30           | 60    | 製<br>膜<br>不<br>可 |
| 透湿度<br>(g/m <sup>2</sup> ・24hr.) | 3060       | 2510       | 2500       | 350          | 1100  |                  |
| 耐水度<br>(mm H <sub>2</sub> O)     | 1000<      | 1000<      | 1000<      | 1000<        | 1000< |                  |
| 破断時強度 MD<br>(gf/25mm) TD         | 650<br>700 | 740<br>820 | 680<br>700 | 1500<br>1650 | —     |                  |
| 破断時伸度 MD<br>(%) TD               | 550<br>600 | 610<br>660 | 540<br>580 | 600<br>600   | —     |                  |
| 50%<br>2サイクル<br>歪(%) MD          | 6          | 5          | 6          | 7            | —     | 可                |
| TD                               | 6          | 6          | 6          | 7            | —     |                  |

【0020】

【発明の効果】以上本発明によれば、熔融張力の向上、

ブロッキングの改善等による成形性を改良し、低コスト※50

※で生産性のよいインフレーション法によるポリエーテル系の熱可塑性ポリウレタンを用いた透湿性、防水性に富み、機械的強度にも優れたウレタン系エラストマーフィ

(5)

特開平8-59981

7

8

ルムを提供することができる。特に、おむつ分野において指標とされる透湿度 $2000\text{ g/m}^2 \cdot 24\text{ hrs}$ 以上、耐水度 $1000\text{ mmH}_2\text{O}$ 以上の水準をクリアし、

伸縮性に優れたウレタン系エラストマーフィルムを提供することができた。

---

フロントページの続き

(51)Int. Cl.<sup>6</sup>

B29K 75:00

識別記号

庁内整理番号

F I

技術表示箇所

\* NOTICES \*

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

CLAIMS

---

[Claim(s)]

[Claim 1] (a) The moisture permeability urethane system elastomer film which carries out film fabrication of the thermoplastic-elastomer constituent which comes to add the (c) bulking agent 5 - 40 weight sections to the polyurethane system resin constituent 100 weight section which consists of 5 - 25 % of the weight of 75 - 95 % of the weight (b) ethylene propylene-diene copolymer rubber of thermoplastic polyurethane resins which a soft segment becomes from a polyether, and is characterized by the bird clapper.

[Claim 2] The moisture permeability urethane system elastomer film according to claim 1 with which a polyurethane system resin constituent contains a low-density-polyethylene system resin, and is characterized by the bird clapper.

[Claim 3] The moisture permeability urethane system elastomer film according to claim 1 or 2 characterized by film fabrication being performed by the tubular film process.

---

[Translation done.]

## \* NOTICES \*

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

## DETAILED DESCRIPTION

## [Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Industrial Application] Especially this invention relates to the urethane system elastomer film which can be effectively used above all in moisture permeability and the field which needs waterproof possession in garments fields, such as hygienic-goods fields, such as gathers of a diaper, and a backseat, and a coat, etc. about an urethane system elastomer film.

[0002]

[Description of the Prior Art] After applying the solvent solution of a polyurethane polymer to a release paper, passing the inside of a drying furnace subsequently and drying a solvent using continuation coating equipment which is indicated by JP,62-290714,A, using polyether system thermoplastic polyurethane as the manufacture method of the conventional moisture permeability urethane film, there is the method of \*\* [ the method ] or exfoliating and rolling round on a winding roll which does not exfoliate the formed film from a release paper. However, recovery of a solvent, a dryness process, etc. are required for the method of applying the solvent solution of the polyurethane polymer concerned to a release paper, drying a solvent, and obtaining an urethane film, it leads to cost quantity, and there is a problem also in productivity.

[0003] moreover, a thermoplastic polyurethane elastomer -- adhesiveness -- high -- blocking -- easy -- melting tension -- a low sake -- the very thing -- if independent, since the film production by the cast method, the tubular film process, etc. is difficult, improving processability is proposed when melting tension mixes highly the low resin of temperature dependence, and the resin which improves blocking nature in thermoplastic polyurethane. However, although a moldability is improved, the film obtained by the increase in the addition of such a resin spoiled the original moisture permeability which the urethane resin concerned has, and has still left the room of improvement to the blocking resistance.

[0004]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] this invention cancels the fault which this conventional technology has. Improvement in melting tension, The moisture permeability using the thermoplastic polyurethane of the polyether system which improved the moldability by the improvement of blocking etc., It aims at offering the urethane system elastomer film which is an urethane system elastomer film which is rich in waterproofness, and was excellent also in the mechanical strength. The level more than 2-24 or more hrs(es) of moisture-vapor-transmission 2000 g/m especially made into an index in a diaper field and water-resistance 1000mmH<sub>2</sub>O is cleared, and it aims at offering the urethane system elastomer film excellent in elasticity.

[0005]

[Means for Solving the Problem] In view of the above-mentioned purpose, as a result of examination, this invention completes this invention to the thermoplastic polyurethane resin of a polyether system, when melting tension carries out the amount combination of specification of the low resin and bulking agent of temperature dependence highly. That is, the moisture permeability urethane system elastomer film which carries out film fabrication of the thermoplastic-elastomer constituent which comes to add the (c) bulking agent 5 - 40 weight sections to the polyurethane system resin constituent 100 weight section which consists of 5 - 25 % of the weight of thermoplastic polyurethane-resin [ which the (a) soft segment becomes from a polyether ] 75 - 95 % of the weight (b) ethylene propylene-diene copolymer rubber, and is characterized by the bird clapper is started.

[0006] Hereafter, this invention is explained in detail. As the thermoplastic (aforementioned a) polyurethane resin in this invention, the polyether system polyurethane elastomer which a soft segment becomes from a polyether is used. Although a thermoplastic polyurethane resin is the addition polymerization object of a long-chain glycol, a short-chain glycol, and diisocyanate. The thermoplastic polyurethane resin which the soft segment concerned becomes from a polyether As a long-chain glycol, as polyether system compounds, such as a poly(tetramethylene glycol) (PTMG), a poly(ethylene glycol) (PEG), and a poly(propylene glycol) (PPG), and a short-chain glycol Using tolylene diisocyanate, 4, 4'-diphenylmethane diisocyanate, hexamethylene di-isocyanate, etc. as ethylene glycol, 1, 4-butanediol, 1, 4-hexandiols, and diisocyanate, addition polymerization is carried out and it is obtained.

[0007] The (b) ethylene propylene-diene copolymer used in this invention is a copolymer containing ethylene, a propylene, and a diene compound. As the aforementioned diene compound, there are ethylidene norbornene, 1, 4-hexadiene, a dicyclopentadiene, etc. The above-mentioned ethylene-propylene-diene copolymer rubber (EPDM) has that desirable whose content of a propylene is 10 - 80 % of the weight. It is 15 - 70 % of the weight more preferably. As for the number average molecular weight of the ethylene-propylene-diene copolymer concerned, 400,000-600,000 are desirable, and density is 0.87 g/cm<sup>3</sup>. The following is desirable. Furthermore, as a melt index (190 degrees C, 2.16kg load), within the limits of 0.1-12.0g / 10 minutes is desirable, and is 0.1-5.0g / 10 minutes more preferably.

[0008] The thermoplastic polyurethane resin which the (a) soft segment becomes from a polyether is [ the (b) ethylene propylene-diene copolymer rubber of the blending ratio of coal of each component in the polyurethane system resin constituent used in this invention ] 5 - 25 % of the weight 75 to 95% of the weight. At less than 75 % of the weight, the property of a polyurethane elastomer is lost for the thermoplastic polyurethane resin which the above-mentioned (a) soft segment becomes from a polyether, and a moisture vapor transmission becomes bad, and the abrasion resistance and the mechanical strength which are the property of polyurethane fall. On the other hand, if it exceeds 95 % of the weight, it will be easy to block an inflation tube and it will become difficult to remove to two sheets after both the ears slit. Moreover, since the temperature dependence of a urethane resin to melting physical properties is high, a bubble is unstable and film production by the tubular film process becomes difficult. (b) Ethylene propylene-diene copolymer rubber tends to block



an inflation tube at less than 5 % of the weight, it becomes difficult to remove to two sheets after both the ears slit, and it becomes inadequate [ the stability in film production of a film ]. On the other hand, if it exceeds 25 % of the weight, although flexible flexibility will be maintained, the moisture vapor transmission of a product falls remarkably.

[0009] In the above-mentioned polyurethane system resin constituent, the moldability by improvement in melting tension, the improvement of blocking, etc. can be further improved by blending a low-density-polyethylene system resin. the homopolymer of ethylene according to a high pressure process as the low-density-polyethylene system resin concerned, and a line -- a low density polyethylene or ethylene is made into a principal component, and a copolymer with 20 or less % of the weight of a vinyl system compound etc., for example, an ethylene vinyl acetate copolymer, an ethylene ethyl-acrylate copolymer, etc. are raised. The density of the low-density-polyethylene system resin concerned has a three or less 0.935 g/cm desirable thing, and its melt index (MI, 190 degrees C, 2 or 16kg of loads) is [ the thing for 0.05-20g / 10 minutes ] desirable. When blending a low-density-polyethylene system resin, it is desirable to carry out to to 40% of the weight of (b) ethylene propylene-diene copolymer rubber. At 40 % of the weight or more, the moisture vapor transmission of a product is spoiled for the rate of a compounding ratio of a low-density-polyethylene system resin, and flexible flexibility runs short.

[0010] The (c) bulking agent is added by the thermoplastic-elastomer constituent in this invention. As a bulking agent, (c) Talc, a calcium carbonate, gypsum, carbon black, Clay, a kaolin, a silica, the diatom earth, a magnesium carbonate, a barium carbonate, Magnesium sulfate, a barium sulfate, a calcium sulfate, calcium phosphate, An aluminum hydroxide, a zinc oxide, a magnesium hydroxide, a calcium oxide, Although a thing with the blocking prevention effects, such as a magnesium oxide, titanium oxide, an alumina, a mica, milt BAL-N, a zeolite, clay silicate, cement, silica fumes, a mica powder, and nylon powder, can be used Talc, titanium oxide, a calcium carbonate, especially a silica, etc. are desirable. these bulking agents are independent -- it is -- it can be combined and used. Moreover, what performed surface treatment may be used for a bulking agent. The addition of the above-mentioned bulking agent is 5 - 40 weight section to the above-mentioned polyurethane system resin constituent 100 weight section. A blocking resistance is not improved although the physical properties balance of the direction of MD/TD of a film has the good addition of a bulking agent in under 5 weight sections. Moreover, if 40 weight sections are exceeded, although a blocking resistance improves, intensity will become high and flexibility will be spoiled.

[0011] An antioxidant, an ultraviolet ray absorbent, a coloring agent, etc. can be suitably blended with the above-mentioned thermoplastic-elastomer constituent if needed.

[0012] Melting kneading is carried out using a twin screw extruder etc., and the above-mentioned thermoplastic-elastomer constituent is fabricated in this invention on a film. Although the method of manufacturing a film from the constituent concerned can be fabricated as a flat film by T-die extruder which is the well-known method of usually fabricating a polyolefine film, its air-cooling tubular film process fabricated as a film of the shape of a tube by the tubular film process is desirable. In an air-cooling tubular film process, a bubble required for thin-film-izing and improvement in the speed of fabrication is stabilized, and blocking nature can be reduced, without spoiling the property of a thermoplastic polyurethane resin. In order to reduce blocking nature, without stabilizing a bubble required for thin-film-izing and improvement in the speed of fabrication by the inflation-molding method by the air-cooling method concerned, and spoiling the property of a thermoplastic polyurethane resin, it is desirable to perform a blow ratio in 2.0-5.0 at the resin temperature of 180-220 degrees C. About the manufacture method of such a film, the matter of an indication is applicable to JP,3-128945,A. In order to reduce blocking nature, without stabilizing a bubble required for thin-film-izing and improvement in the speed of fabrication, and spoiling properties including the moisture vapor transmission of a thermoplastic polyurethane resin, although suitably chosen by various uses, as for the thickness of a film, it is usually desirable to fabricate in about 25-40 micrometers.

[0013]

[Example] Next, the example of this invention is shown. In addition, the test method in an example and the example of comparison is as follows.

(1) Moisture vapor transmission; JIS It is based on Z0208.

(2) Water resistance; JIS It is based on L1092.

(3) the time of fracture -- on-the-strength; -- JIS L1096 -- conformity

(4) the time of fracture -- ductility: -- JIS L1096 -- conformity

(5) 50% two-cycle distortion; JIS It is based on L1096.

(6) Film production nature; O [ ... A bubble is unstable and they are those with blocking, and X. / ... Film production is impossible. ] ... A bubble is completely stabilized and they are blocking full. \*\* nothing and O... A bubble is stabilized and they are blocking nothing and \*\*.

[0014] the thermoplastic polyurethane resin (tradename REZAMIN P-210 by Dainichiseika Colour & Chemicals Mfg. Co., Ltd.) which an example 1 - 3. soft segment become from a polyether, and an ethylene propylene diene copolymer (number average molecular weight 450,000) density 0.87 g/cm<sup>3</sup>, 10-MI=0.1g /, and minutes, and propylene content 27wt% -- and As opposed to the constituent 100 weight section of the compounding ratio shown in Table 1 which consists of a high-pressure-process low density polyethylene (density 0.935 g/cm<sup>3</sup>, 10 MI=0.8g /, minutes) About the constituent which comes to add the stearin acid processing calcium-carbonate (2 micrometers of mean particle diameters) 30 weight section, it is a 2 shaft kneading machine at 180 degrees C. Melting kneading was carried out, and the film of 30-micrometer \*\*, 40-micrometer \*\*, and 30-micrometer \*\* was produced on condition that the following by the air-cooling tubular film process, and it considered as examples 1, 2, and 3, respectively.

Die \*\*\*\*\* 150mm, blow ratio [ .... 195 degrees C, resin pressure force of a die outlet / .... 200 kg/cm<sup>2</sup> the amount of extrusion / ... A part for \*\*\*\*\* 10 m/in 35 - 45 kg/hr and taking over speed, ] ... 3.5, cylinder temperature of an extruder ... Resin temperature of 190-degrees C die outlet [0015] About the obtained elastomer film, ductility and 50% two-cycle distortion were measured at the time of intensity and fracture at the time of a moisture vapor transmission, a water resistance, and fracture. The result is shown in Table 1.

[0016] Melting kneading of the constituent which consists of thermoplastic polyurethane-resin 50wt% [ which the soft segment of use becomes from a polyether in the example of comparison 1. examples 1-3 ], and ethylene propylene diene copolymer 30wt%, and high-pressure-process low-density-polyethylene 20wt% was carried out with the 2 shaft kneading machine at 180 degrees C like the example 1, and the film was produced by the air-cooling tubular film process. Although membrane formation nature and mechanical physical properties are good, since there are few amounts of a thermoplastic polyurethane resin, moisture permeability has been checked.

[0017] In the example of comparison 2. example 1, the film was similarly produced except having set to have not blended a stearin acid processing calcium carbonate and thickness to 60 micrometers. At the time of film production, after swelling by the air-cooling tubular film process, it pressed by the nip roll, and after folding up a tube, in two sheets, both ears were trimmed and they did not separate [ the method of a division and the bottom blocked and ]. In addition, the measured value of the moisture vapor transmission in Table 1 and a water resistance is a value about a two-ply thing. Moreover, also letting out a film from a reel (winder) after a film production end and the

difficult part were seen. It has not measured about other machine physical properties.

[0018] In the example of comparison 3. example 1, other than having not blended an ethylene propylene diene copolymer, although it was going to produce the film similarly, melting tension was low and was not able to produce a film.

[0019]

[Table 1]

|                                  | 実 施 例      |            |            | 比 較 例        |        |                  |
|----------------------------------|------------|------------|------------|--------------|--------|------------------|
|                                  | 1          | 2          | 3          | 1            | 2      | 3                |
| 組成成分<br>PU (wt %)                | 85         | 85         | 80         | 50           | 85     | 100              |
| EPDM (wt %)                      | 15         | 15         | 15         | 30           | 15     | —                |
| LDPE (wt %)                      | —          | —          | 5          | 20           | —      | —                |
| CaCO <sub>3</sub> (Phr)          | 30         | 30         | 30         | —            | —      | 30               |
| 製膜性                              | ○          | ○          | ◎          | ○            | △      | X                |
| フィルム<br>厚み (μm)                  | 30         | 40         | 30         | 30           | 60     | 製<br>膜<br>不<br>可 |
| 透湿度<br>(g/m <sup>2</sup> ・24hr.) | 3060       | 2510       | 2500       | 350          | 1100   |                  |
| 耐水度<br>(mm H <sub>2</sub> O)     | 1000 <     | 1000 <     | 1000 <     | 1000 <       | 1000 < |                  |
| 破断時強度 MD<br>(gf/25mm) TD         | 650<br>700 | 740<br>820 | 680<br>700 | 1500<br>1650 | —      |                  |
| 破断時伸度 MD<br>(%) TD               | 550<br>600 | 610<br>660 | 540<br>580 | 600<br>600   | —      |                  |
| 50 %<br>2サイクル MD<br>歪 (%) TD     | 6<br>6     | 5<br>6     | 6<br>6     | 7<br>7       | —      |                  |

[0020]

[Effect of the Invention] Above, according to this invention, the moldability by improvement in melting tension, the improvement of blocking, etc. can be improved, it can be rich in the moisture permeability and the waterproofness using the thermoplastic polyurethane of the polyether system by the good tubular film process of productivity by the low cost, and the urethane system elastomer film excellent also in the mechanical strength can be offered. The level more than 2-24 or more hrs(es) of moisture-vapor-transmission 2000 g/m especially made into an index in a diaper field and water-resistance 1000mmH<sub>2</sub>O was able to be cleared, and the urethane system elastomer film excellent in elasticity was able to be offered.

[Translation done.]